

CONDUCTIVE RESIN COMPOSITION, SEPARATOR FOR FUEL CELL AND SEALING MATERIAL

Patent number: JP2000017179
Publication date: 2000-01-18
Inventor: YAMADA HITOSHI; MORIMOTO KAZUKI; NISHIMOTO KAZUO
Applicant: NICHIAS CORP
Classification:
- international: C08L101/00; C08K3/04; C08K3/40; C08K7/02; C08K7/06; C08K7/14; C08L67/03; C09K3/16; H01M8/02
- european:
Application number: JP19980184784 19980630
Priority number(s): JP19980184784 19980630

[Report a data error here](#)

Abstract of JP2000017179

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a conductive resin composition capable of exhibiting excellent moldability, conductivity, gas seal performance and strength, usable for separator for fuel cell, sealing material or the like, by utilizing a liquid crystal polymer as composite resin with a conductive filler.

SOLUTION: This composition includes (A) the liquid crystal polymer such as liquid crystal polyester or the like, (B) the conductive filler such as graphite (for example expanded graphite, granular graphite), Ketjenblack, acetylene black, furnace carbon black, thermal carbon black or the like, and if necessary, (C) carbon fiber or glass fiber. This composition preferably, includes 50 to 900 pts.wt, more preferably 100 to 600 pts.wt. of the component B per 100 pts.wt. of the component A.

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

D3

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-17179

(P2000-17179A)

(43) 公開日 平成12年1月18日 (2000.1.18)

| (51) Int.Cl. ⁷ | 識別記号 | F I | テマコード* (参考) |
|---------------------------|------|----------------|-------------|
| C 0 8 L 101/00 | | C 0 8 L 101/00 | 4 J 0 0 2 |
| C 0 8 K 3/04 | | C 0 8 K 3/04 | 5 H 0 2 6 |
| 3/40 | | 3/40 | |
| 7/02 | | 7/02 | |
| 7/06 | | 7/06 | |

審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 8 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平10-184784

(22) 出願日 平成10年6月30日 (1998.6.30)

(71) 出願人 000110804

ニチアス株式会社

東京都港区芝大門1丁目1番26号

(72) 発明者 山田 均

静岡県浜松市新都田1-8-1

(72) 発明者 森本 和樹

静岡県浜松市新都田1-8-1

(72) 発明者 西本 一夫

静岡県浜松市新都田1-8-1

(74) 代理人 100073874

弁理士 萩野 平 (外3名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 導電性樹脂組成物、燃料電池用セパレータ及びシール材料

(57) 【要約】

【課題】 製造・成形が容易で、強度、導電性、シール性に優れる樹脂組成物、並びにそれより成る燃料用電池及びシール材料を提供する。

【解決手段】 液晶ポリマーと導電性フィラーとを含むことを特徴とする導電性樹脂組成物、並びに前記導電性樹脂組成物からなる燃料電池用セパレータ及びシール材料。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 液晶ポリマーと導電性フィラーとを含むことを特徴とする導電性樹脂組成物。

【請求項2】 前記導電性フィラーが、黒鉛、ケッチェンブラック、アセチレンブラック、ファーネスカーボンブラック及びサーマルカーボンブラックから成る群より選択される1以上のフィラーであることを特徴とする、請求項1に記載の導電性樹脂組成物。

【請求項3】 前記黒鉛が、膨張黒鉛または粒状黒鉛であることを特徴とする請求項2に記載の導電性樹脂組成物。

【請求項4】 前記液晶ポリマーが、液晶ポリエステルであることを特徴とする、請求項1～3の何れか一項に記載の導電性樹脂組成物。

【請求項5】 前記導電性フィラーの配合量が、前記液晶ポリマー100重量部に対して50～900重量部であることを特徴とする請求項1～4の何れか一項に記載の導電性樹脂組成物。

【請求項6】 前記導電性フィラーの配合量が、前記液晶ポリマー100重量部に対して100～600重量部であることを特徴とする請求項5に記載の導電性樹脂組成物。

【請求項7】 炭素繊維及び／またはガラス繊維をさらに含有することを特徴とする請求項1～6の何れか一項に記載の導電性樹脂組成物。

【請求項8】 請求項1～7の何れか一項に記載の導電性樹脂組成物から成ることを特徴とする燃料電池用セパレーター。

【請求項9】 請求項2～7の何れか一項に記載の導電性樹脂組成物から成ることを特徴とするシール材料。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、導電性樹脂組成物、並びに前記導電性樹脂組成物からなる燃料電池用セパレーター及びシール材料に関する。

【0002】

【従来の技術】近年、燃料の有する化学エネルギーを電気的エネルギーに直接変換する燃料電池に関する需要が高まっている。一般に燃料電池は、電解質を含有するマトリックスを挟んで電極板が配置され、さらにその外側にセパレーターが配置された単位セルを、多数積層した構成となっている。通常、セパレーターの片面には燃料が、もう一方の面には気体酸化剤等が供給されるので、セパレーターは両者が混合しないよう、気体不透過性に優れることが必要である。また、単位セルを積層して用いるので、セパレーターは高い導電性を有し、かつ強度にも優れることが要求される。

【0003】従来より、燃料電池用セパレーターとしては、黒鉛シートをプレス成形して得られた成形品、炭素焼結体に樹脂を含浸させた樹脂含浸材、熱硬化性樹脂を

不活性雰囲気中で焼成して得られるガラス状カーボン、炭素粉末と樹脂とを混合後成形した樹脂成形品等が用いられている。例えば特開昭60-37670号公報には、フェノール樹脂等の熱硬化性樹脂とカーボンペーパーより成るセパレーターが；特開平1-311570号公報には、フェノール樹脂、フラン樹脂等の熱硬化性樹脂に膨張黒鉛及びカーボンブラックを配合して成るセパレーターが、それぞれ開示されている。

【0004】黒鉛やカーボンブラック等のフィラーはまた、シール材料用の原料としても用いられる。例えば、カーボンブラックをゴム等のポリマーに充填すると、ポリマーの溶剤膨潤度を改善し、また、強度、耐摩耗性等の特性を付すことができる。黒鉛は、その優れた摺動性とフランジ表面へのなじみ性故、単体でまたはポリマーとの複合材の形で、パッキン、ボルトテックスガスケット等のシール材料として用いられる。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、燃料電池用セパレーターにおいては、樹脂含浸材では、切削加工が必要となり、製造に手間とコストがかかる。ガラス状カーボンを用いると、焼成前に製品形状への成形加工が可能となるが、焼成時の寸法収縮等、寸法安定性の点で問題が生じる。樹脂成形品は、成形が容易であるが、樹脂の電気絶縁性の故に導電性に劣る欠点がある。この点を改善すべく導電性フィラーを多量充填すると、成形が困難または不可能となる。また、シール材料においても、フィラーの多量充填は様々な利点をもたらす。例えば、カーボンブラックをゴム中に多量充填し、耐ガス透過性を改善することができる。特に黒鉛系シール材料においては、高い摺動性、表面なじみ性を得る上で、黒鉛配合率をできるだけ高めることが望ましい。これらシール材料においても、フィラーの多量充填により、成形性の悪化、強度低下等の問題が生じる。

【0006】本発明はこのような状況に鑑みてなされたものであり、製造・成形が容易で、強度、導電性、シール性に優れた樹脂組成物、並びにそれより成る燃料電池及びシール材料を提供することを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、上記目的を達成すべく導電性フィラーとの複合に使用する樹脂について検討した結果、液晶ポリマーを使用することによって、成形が容易で、例えば燃料電池用セパレーターやシール材料に適用した場合に、必要な導電性、ガスシール性、強度がバランス良く優れる複合材が得られることを見出した。すなわち、本発明は、液晶ポリマーと導電性フィラーとを含むことを特徴とする導電性樹脂組成物、並びに前記導電性樹脂組成物からなる燃料電池用セパレーター及びシール材料に関する。

【0008】

【発明の実施の形態】以下、本発明に関して詳細に説明

する。本発明においては、樹脂成分として液晶ポリマーを使用することが重要な要件である。後記する実施例でも示すように、樹脂成分として他のポリマーを用いても、本発明が目的とする高導電性、高強度、成形容易性等の物性を兼備する複合材を得ることはできない。一方、本発明に従い液晶ポリマーを樹脂成分とすることにより、導電性、ガスシール性、強度等の物性がバランス良く優れた組成物を得ることができる。しかも本発明の導電性樹脂組成物は、熱硬化性樹脂を樹脂成分とする導電性樹脂組成物と比べた場合は勿論、熱可塑性樹脂を樹脂成分とする導電性樹脂組成物と比べても、製造・成形が容易となる。また、液晶ポリマー自体の体積抵抗率は、従来の導電性樹脂組成物に使用されている樹脂成分（例えば、比較例に挙げたポリアミドやポリブチレンテレフタレート、ポリエステル系熱可塑性エラスマー）に比べて高いにも拘わらず、導電性フィラーとの複合体では従来の樹脂成分との複合体よりも優れた導電性を示すようになる。これらは、全く予期されなかったことである。

【0009】この液晶ポリマー（ＬＣＰ）は、それ自体は公知である。ＬＣＰとは熔融時に液晶状態を示すポリマーの総称であり、一つの構造式で描くことのできるものではない。本発明においても、ＬＣＰと言う語は液晶性を示すポリマーの総てを包含する。複数のＬＣＰを併用することもできる。ＬＣＰは熔融時に配列した分子集合体を形成し、剪断や伸張等の外力を受けるとその方向に配向して、冷却固化時にこの配向を保ったまま固化する。そのため、他のポリマーに比べ、高い流動性、低い線膨張係数、良好な寸法精度、高強度、耐熱性、難燃性、耐薬品性等を示す。尚、固化した際に結晶性があれば結晶性ＬＣＰ、なければ非晶性ＬＣＰと呼ばれる。

【0010】また、ＬＣＰは市場から容易に入手可能であるが、市販ＬＣＰは通常、その熱変形温度を基に、熱変形温度が300℃以上のタイプⅠ、240～300℃のタイプⅠⅠa、200～240℃のタイプⅠⅠb、200℃未満のタイプⅠⅠⅠに分類される。本発明においては、いずれのタイプのＬＣＰをも使用することができる。例えば耐熱性の要求される用途にはタイプⅠやⅠⅠaのＬＣＰを、低温での成形が必要とされる場合にはタイプⅠⅠⅠやⅠⅠbのＬＣＰを使用する。市販のＬＣＰは2種以上のモノマーから成る共重合体であり、その結合様式には、エステル結合のみから成るもの（液晶ポリエステル）の他、アミド結合やイミド結合、カーボネート結合、ウレタン結合等が導入されたものがある。本発明ではこれらＬＣＰのいずれをも使用することができるが、中でも液晶ポリエステルを使用するのが好ましい。

【0011】液晶ポリエステルもまた公知であり、日本石油化学（株）のザイダー、ポリプラスチックス（株）のベクトラ、三菱エンジニアリングプラスチック（株）のノバキュレート、ユニチカ（株）のロッドラン、住友

化学工業（株）のスムिकासーパー等、種々の製品が市販されている。通常、液晶ポリエステルは $-O-\phi-C(=O)-$ 成分（ここで、 ϕ はパラフェニレン基を示す）と； $-O-\phi-O-$ 、 $-O-\phi-\phi-O-$ 、 $-C(=O)-\phi-C(=O)-$ 、 $-C(=O)-\phi-\phi-C(=O)-$ 等の剛直成分； $-O-m-\phi-O-$ 、 $-C(=O)-m-\phi-C(=O)-$ 、 $-C(=O)-m-\phi-m-\phi-C(=O)-$ 、 $-O-m-\phi-C(=O)-$ 、 $-O-\phi-O-\phi-O-$ 、 $-O-\phi-C(=O)-\phi-O-$ 、 $-O-\phi-C(CH_3)_2-\phi-O-$ 、 $-O-m-\phi-C(CH_3)_2-\phi-O-$ 、 $-O-m-\phi-C(=O)-\phi-C(=O)-$ 、 $-O-Np-O-$ 、 $-O-Np-C(=O)-$ 、 $-C(=O)-Np-C(=O)-$ 等（ここで、 $m-\phi$ はメタフェニレン基を、 Np はナフチル基を示す）のBent、Crankshaft成分、またはこれらにアルキル基、フェニル基等の置換基を付した成分、または； $-O-R-O-$ 、 $-C(=O)-\phi-O-R-O-\phi-C(=O)-$ 等（ここで、 R はアルキレン基を示す）の柔軟鎖とを共重合させた構造となっている。タイプⅠの高耐熱性液晶ポリエステルは $-O-\phi-C(=O)-$ 成分と剛直成分とから主として成り、タイプⅠⅠaはナフチル基を有するCrankshaft成分を含む場合が多い。一般に脂肪族基を含む、例えば $[-O-\phi-C(=O)-]_n[-C(=O)-\phi-C(=O)-O-R-O-]_m$ のような構造の液晶ポリエステルはタイプⅠⅠb、ⅠⅠⅠに分類され、成形温度が低く、柔軟性に優れる。本発明においては上記したいずれのタイプの液晶ポリエステルをも使用することができる。その分子構造、耐熱性、熱変形温度、分子量、熔融粘度等に特に制限はない。しかしながら耐熱性を要求される用途にはタイプⅠまたはⅠⅠaの液晶ポリエステルを、柔軟性、流動性の要求される用途にはタイプⅠⅠbまたはⅠⅠⅠ、特に脂肪族基を含む液晶ポリエステルを使用するのが好ましい。流動性が特に必要な場合には、温度300℃での熔融粘度が、好ましくは剪断速度 10^3 /秒で 10^3 ポイズ以下、より好ましくは剪断速度 10^2 /秒で 10^3 ポイズ以下、特に好ましくは剪断速度 10^3 /秒で 10^2 ポイズ以下の液晶ポリエステルを使用する。このことによって、導電性フィラーを多量充填した場合にも、良好な成形性及び強度を保持することができる。

【0012】導電性フィラーも、種々の公知のものを使用することができる。例えば銀、ニッケル、銅、アルミニウム、鉄、ステンレス等の金属の粉末、フレーク、繊維； SnO_2 、 ZnO 、 In_2O_3 、 TiO_2 の金属酸化物；導電性被覆型導電性フィラー；カーボン系の粉末、繊維、フレーク等が挙げられるが、これらに限定されない。複数の導電性フィラーを併用することも可能である。

【0013】しかしながら本発明においては、導電性フィラーとしてカーボン系の粉末またはフレーク、例えばカーボンブラック、黒鉛等を使用するのが好ましい。これらカーボン系フィラーを用いることにより、導電性樹

脂組成物の耐腐食性を高め、また、燃料電池等として用いられる際にも副反応を防止することができる。より好ましくは、黒鉛、ケッチェンブラック、アセチレンブラック、ファーネスカーボンブラック、サーマルカーボンブラックから成る群より選択される1以上のフィラーを使用する。このことによって、得られる組成物はより導電性に優れるものとなる。これらの内、ケッチェンブラック、アセチレンブラックは導電性フィラーとして開発されたものであり、それぞれ天然ガス等の不完全燃焼、アセチレンの熱分解により得られる。ファーネスカーボンブラックは炭化水素油や天然ガスの不完全燃焼により得られるフィラーであり、粒径に応じてSAF、ISAF、IISAF、HAF、FF、FEF、MAF、GPF、SRF、CF等に分類される。サーマルカーボンブラックは天然ガスの熱分解により得られる大粒子径のカーボンであり、例としてFTカーボン、MTカーボン等が挙げられる。

【0014】本発明においてはこれらカーボン系フィラーのいずれを単独で、もしくは2種以上を混合して用いても良いが、より好ましくは黒鉛またはケッチェンブラックを、特に好ましくは黒鉛を使用する。この黒鉛の種類に特に制限はなく、粒状黒鉛、鱗片状黒鉛、膨張黒鉛、コロイド黒鉛等、どのような形態の黒鉛をも使用することができる。フッ化グラファイト、または各種金属原子、ハロゲン原子、ハロゲン化合物等をインターカレートしたグラファイト層間化合物の使用も可能である。ここで、膨張黒鉛とは黒鉛結晶構造の層間を拡張処理したもので、導電性、潤滑性が特に良好である。上記した黒鉛の中でも、膨張黒鉛、粒状黒鉛が特に好ましい。

【0015】導電性フィラーの配合量は、液晶ポリマー100重量部に対し、50～900重量部が好ましい。導電性フィラーの配合量が50重量部を下回ると満足な導電性が得られず、900重量部を越えると成形性または強度の点で問題を生じる。これらの点を考慮すると、導電性フィラーの配合量は、100～600重量部、特に200～500重量部とするのが特に好ましい。

【0016】本発明の導電性樹脂組成物は、さらに繊維を配合することにより、その成形品（例えば燃料電池用セパレータやシール材料）の機械的強度を強化することも可能である。例えば、炭素繊維及び／またはガラス繊維を、液晶ポリマー100重量部に対して1～100重量部、特に10～50重量部程度配合すると、得られる成形品の強度、特に耐衝撃性を改善することができる。炭素繊維、ガラス繊維の種類に特に制限はなく、種々の公知の繊維を使用することができる。他に、綿、羊毛、絹、麻、ナイロン繊維、アラミド繊維、ビニロン（ポリビニルアルコール）繊維、ポリエステル繊維、レーヨン繊維、アセテート繊維、フェノールホルムアルデヒド繊維、ポリフェニレンサルファイド繊維、アクリル繊維、ポリ塩化ビニル繊維、ポリ塩化ビニリデン繊維、ポ

リウレタン繊維、テトラフロロエチレン繊維等の繊維を使用することも可能である。しかしながら本発明においては、炭素繊維、特にPAN系炭素繊維、ピッチ系炭素繊維を使用するのが好ましい。このことによって、成形品の導電性を殆ど損なうことなく強度を改善することができる。繊維の形状にも特に制限はないが、好ましくは長さが約0.01～100mm、特に約0.1～20mmの範囲内の繊維を使用する。繊維長さが100mmを越えると成形が難しく、また表面を平滑にし難くなり、0.01mmを下回ると補強効果が期待できなくなる。

【0017】本発明の導電性樹脂組成物には、他に、任意的成分として他のポリマー、例えばPET、PBT、ポリエステル系熱可塑性エラストマー、低分子量ポリエステル、ポリアミド、ニトリルゴム、アクリルゴム等；他の充填材、例えばシリカ、炭酸カルシウム、硫酸バリウム、粘度鉱物等のフィラー、顔料等；さらには分散剤、老化防止剤、カップリング剤、相容化剤、難燃剤、表面平滑剤、脂肪酸やそのエステル、フタル酸エステル等の可塑剤、プラスチック粉末、加工助剤等を配合することもできる。

【0018】本発明の導電性樹脂組成物は、種々の慣用の方法によって製造することができる。一般的には、LCPを加熱熔融させて混練し、導電性フィラーや繊維等を添加する。典型的には、ニーダー、バンバリーミキサー、押出機、加熱ロール等でLCPを熔融し、そこに導電性フィラーや繊維等を混練下添加する。

【0019】以上の如く構成される、本発明の導電性樹脂組成物は、成形が容易で、導電性が高く、かつ強度及び気体不透過性に優れる。それ故燃料電池用セパレータの材料として最適である。また、本発明の導電性樹脂組成物の内、導電性フィラーとしてカーボン系フィラー、特に黒鉛を用いたものは、気体不透過性等に優れる上、良好な摺動性、表面なじみ性を有する。それ故、シール材料、特にパッキンとしても有用である。

【0020】成形法は特に制限されず、射出成形、押出成形、トランスファー成形、ブロー成形、プレス成形、射出プレス成形、押出射出成形等、熱可塑性樹脂の分野で汎用の種々の成形法によって各種の形状へと成形することができる。また、これらの成形法を複数組み合わせても良い。例えば射出成形や押出成形により得られた成形品同士を熔融接着させることも出来、また、押出成形やプレス成形により得られたシート状物をプレス成形等によって複雑な凹凸形状の物品へと本成形しても良い。当業者であれば、用途及び形状に応じ、好ましい成形法及び成形条件を選定することが可能であろう。熔融成形が可能と言う長所を持つため、複雑な形状の物品、熱の通り難い厚物等の材料として特に有用である。また、成型品のリサイクルや、バリ部分等の再利用も可能である。以下、本発明を実施例によりさらに詳しく説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

【0021】

【実施例】〔実施例1～6、比較例1～5〕

・サンプルの調製

各種の樹脂を用いて、膨張黒鉛との組成物を作成した。
使用した樹脂の性状を、以下に示す。

LCP-1: タイプ I I I の液晶ポリエステル、体積固有抵抗 $1 \times 10^{17} \Omega \cdot \text{cm}$ 、熱変形温度 120°C 、比重 1.38

LCP-2: タイプ I I I の液晶ポリエステル、体積固有抵抗 $6 \times 10^{16} \Omega \cdot \text{cm}$ 、熱変形温度 170°C 、比重 1.41

LCP-3: タイプ I I b の液晶ポリエステル、体積固有抵抗 $1 \times 10^{17} \Omega \cdot \text{cm}$ 、熱変形温度 210°C 、比重 1.38

PA-1: ポリアミド6、体積固有抵抗 $1 \times 10^{15} \Omega \cdot \text{cm}$ 、比重 1.14

PA-2: ポリアミド66、体積固有抵抗 $1 \times 10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$ 、比重 1.15

PA-3: ポリアミド12、体積固有抵抗 $1 \times 10^{16} \Omega \cdot \text{cm}$ 、比重 1.06

PBT: ポリブチレンテレフタレート、体積固有抵抗 $1 \times 10^{16} \Omega \cdot \text{cm}$ 、熱変形温度 60°C 、比重 1.31

TPEE: ポリエステル系熱可塑性エラストマー、体積固有抵抗 $1.8 \times 10^{12} \Omega \cdot \text{cm}$ 、比重 1.15

尚、上記した体積固有抵抗は、ASTM D257に従い測定したものである。熱変形温度は、ASTM D648に従い、荷重 8.6 kgf/cm^2 にて測定した値である。

【0022】そして、表1に示す如く、上記の各樹脂を、加熱装置を備えたミル中、熔融温度以上の温度にて 30 rpm で混練しながら所定量の膨張黒鉛を添加した。全15分間混練後、混練物を取り出して型内に所定量充填し、熱プレスにて $100 \times 100 \times 2 \text{ mm}$ のシートに成形してサンプルを得た。サンプルを製造する際、同時に混練の難易、プレス時の型内での流れ性の良否について判定した。サンプルから試験片を取り出し、曲げ強さ及び体積固有抵抗を、それぞれASTM D790、JISK 7194に従い測定した。サンプルによっては、気体透過度に関する試験も行った。気体透過度の評価は、 1 kgf/cm^2 の加圧下で 2 mm 厚のサンプルを通過する N_2 ガスの透過量を測定することにより行った。単位は ml/分 である。各サンプルを製造する際の難易（混練の難易、プレス時の型内での流れ性の良否）、及びサンプルの物性を、表1に示す。

【0023】

【表1】

表 1: 各サンプルの製造容易性・物性

| | 実施例 1 | 実施例 2 | 実施例 3 | 比較例 1 | 比較例 2 | 比較例 3 | 比較例 4 | 比較例 5 | 実施例 4 | 実施例 5 | 実施例 6 |
|----------------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| LCP-1 | 25.0 | — | — | — | — | — | — | — | 30.0 | 40.0 | 12.5 |
| LCP-2 | — | 25.0 | — | — | — | — | — | — | — | — | — |
| LCP-3 | — | — | 25.0 | — | — | — | — | — | — | — | — |
| PA-1 | — | — | — | 25.0 | — | — | — | — | — | — | — |
| PA-2 | — | — | — | — | 25.0 | — | — | — | — | — | — |
| PA-3 | — | — | — | — | — | 25.0 | — | — | — | — | — |
| PET | — | — | — | — | — | — | 25.0 | — | — | — | — |
| TPEE | — | — | — | — | — | — | — | 25.0 | — | — | — |
| 膨張黒鉛 | 75.0 | 75.0 | 75.0 | 75.0 | 75.0 | 75.0 | 75.0 | 75.0 | 70.0 | 60.0 | 87.5 |
| 混練難易 | 容易 | 容易 | 容易 | 容易 | 容易 | 容易 | やや難 | やや難 | 容易 | 容易 | やや難 |
| プレス内流れ性 | 良好 | 良好 | 良好 | 良好 | やや悪 | 悪 | 悪 | やや悪 | 良好 | 良好 | やや悪 |
| 曲げ強さ(kgf/cm ²) | 232 | 287 | 341 | 187 | 153 | 151 | 134 | 197 | 268 | 371 | 149 |
| 体積固有抵抗(mΩ・cm) | 10 | 8 | 19 | 70 | 80 | 100 | 120 | 47 | 35 | 55 | 2 |
| 気体透過度(ml/分) | 0.01 | 0.01 | — | — | — | — | — | — | — | 0.00 | — |

【0024】本発明に従いLCPを樹脂成分とするサンプルは、混練が容易で型内流れ性も良く、高強度、高導電性を示す。また、気体透過度も低く（誤差程度の値しか測定できなかった）、シール性に優れる。一方、ポリアミドを樹脂成分とするサンプルは、混練が容易で型内流れ性も良好であるが、強度が多少劣り、しかも体積固有抵抗が高い欠点を有する（比較例1～3）。ポリブチレンテレフタレートやポリエステル系熱可塑性エラストマーを樹脂成分とするサンプルでは、混練性、流れ性、

強度、導電性のいずれに関しても、本発明に従うサンプルよりも劣っている（比較例4、5）。また、実施例で用いた原料LCP樹脂自体の体積抵抗率は、3種とも比較例で用いた樹脂（ポリアミド、PBT、TPEE）よりも高いが、それにも拘わらず得られる導電性樹脂組成物は良好な導電性を有している。

【0025】〔比較例6〕樹脂成分としてポリカーボネート（体積固有抵抗 $4 \times 10^{16} \Omega \cdot \text{cm}$ 、比重1.20、熱変形温度135℃）を使用した以外は、実施例1～6と同

じ操作を試みたが、膨張黒鉛を200重量部（全体の約67%）程度添加した時点で混練物が粉体状となって混練機から溢れ、混練続行が不可能となった。

【0026】〔比較例7〕樹脂成分としてポリスチレン（比重1.06、熱変形温度81℃）を使用した以外は、実施例1～6と同じ操作を試みたが、膨張黒鉛を200重量部程度も添加しない内に混練物が粉体状となって混練機から溢れ、混練続行が不可能となった。

【0027】〔実施例7～17〕表2に示す如く各種導

電性フィラーを用い、LCPとの組成物を調製した。ここで、球状銀粉の粒径は0.1～1.0 μ m、炭素繊維の平均繊維長は0.2mm、太さは1d、ガラス繊維の平均繊維長は3mm、太さは2dである。そして、実施例1～6と同様にシート状サンプルを成形した。各サンプルを製造する際の難易性及びサンプルの物性を、表2に示す。

【0028】

【表2】

表 2 : 各サンプルの製造容易性・物性

| | 実施例7 | 実施例8 | 実施例9 | 実施例10 | 実施例11 | 実施例12 | 実施例13 | 実施例14 | 実施例15 | 実施例16 | 実施例17 |
|-----------|----------------------------|------|------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| LCP-1 | 25.0 | 25.0 | 25.0 | 25.0 | 25.0 | 25.0 | 20.0 | 20.0 | 20.0 | 20.0 | 20.0 |
| 膨張黒鉛 | 50.0 | 50.0 | 50.0 | 50.0 | 50.0 | 50.0 | 80.0 | 70.0 | 50.0 | 50.0 | 50.0 |
| 粒状黒鉛 | 25.0 | — | — | — | — | — | — | 10.0 | 30.0 | 25.0 | 25.0 |
| アセチレンブラック | — | 25.0 | — | — | — | — | — | — | — | — | — |
| ケッチェンブラック | — | — | 25.0 | — | — | — | — | — | — | — | — |
| SRFカーボン | — | — | — | 25.0 | — | — | — | — | — | — | — |
| MTカーボン | — | — | — | — | 25.0 | — | — | — | — | — | — |
| 球状銀粉 | — | — | — | — | — | 25.0 | — | — | — | — | — |
| ピッチ系炭素繊維 | — | — | — | — | — | — | — | — | — | 5.0 | — |
| ガラス繊維 | — | — | — | — | — | — | — | — | — | — | 5.0 |
| 製造 | 容易 | 容易 | 容易 | 容易 | 容易 | 容易 | 容易 | 容易 | 容易 | 容易 | 容易 |
| プレス内流れ性 | 良好 | やや悪 | やや悪 | やや悪 | やや悪 | 良好 | 良好 | 良好 | 良好 | やや悪 | 良好 |
| 物性 | 曲げ強さ(kgf/cm ²) | 252 | 273 | 287 | 347 | 307 | 221 | 205 | 214 | 272 | 302 |
| | 体積固有抵抗(m Ω cm) | 13 | 15 | 11 | 17 | 20 | 6 | 7 | 4 | 5 | 8 |

【0029】本発明に従い、LCPを樹脂成分とする導電性樹脂組成物は、導電性フィラーの種類、配合量を種々に変えても、成形が容易で、高い強度及び導電性を示すことが明らかである。

【0030】

【発明の効果】本発明によって、製造・成形が容易で、強度、導電性、シール性に優れる樹脂組成物、並びにそれより成る燃料用電池及びシール材料が提供された。これらの利点を兼ね備える材料が従来見られなかったことに鑑み、本発明の効果は顕著である。

フロントページの続き

| (51)Int. Cl. ⁷ | 識別記号 | F I | テマコード(参考) |
|---------------------------|------|------------|-----------|
| C08K 7/14 | | C08K 7/14 | |
| C08L 67/03 | | C08L 67/03 | |
| C09K 3/16 | 101 | C09K 3/16 | 101B |
| H01M 8/02 | | H01M 8/02 | B |

Fターム(参考) 4J002 CF181 DA017 DA026 DA036
DL007 FA047 FD016 FD017
FD116 GJ02
5H026 BB08 CX02 EE05 EE06 EE18
HH05